

低中放废物的沥青固化

译文集

DIZHONG

FANGFEIWUDELIQINGGUHUA



原子能出版社

61.2187
129

低中放废物的沥青固化

(译文集)

王锡林 等 译

原子能出版社

内 容 简 介

本译文集选入了欧洲化学公司以及法国、西德、比利时、日本、捷克、保加利亚、苏联关于低中放废物沥青固化的文章共24篇,内容包括将带有放射性的废液、废离子交换树脂和盐类掺入沥青的工艺和设备,并评价了低中放废物沥青固化的安全性。

本译文集可供从事环境保护特别是三废处理的人员参考,也可供大专院校有关专业师生参考。

低中放废物的沥青固化

(译文集)

王锡林 等 译

原子能出版社出版

(北京2108信箱)

沈阳新华印刷厂印刷

(沈阳市兴顺街二四十号)

新华书店北京发行所发行·新华书店经售

☆

开本 $850 \times 1168\frac{1}{32}$ ·印张 $12\frac{3}{4}$ ·字数341千字

1981年11月第一版·1981年11月第一次印刷

印数001—1100·统一书号: 15175 252

定价: 2.05元

目 录

放射性废物沥青固化的过去、现在和未来	(1)
欧洲化学公司中放废液与高加浓废浓缩液均相掺入沥青 的研究工作述评	(11)
欧洲化学公司放射性废液的沥青固化	(86)
放射性废物沥青固化的安全问题和应用范围	(111)
欧洲化学公司的中放废物沥青固化厂及工程贮存设施	(116)
欧洲化学公司废物沥青固化装置的交工试运转和开工试验	(130)
NaNO_3 和 NaNO_2 掺合到沥青中引起的危险性	(147)
放射性残渣的沥青固化	(150)
卡尔斯鲁厄核研究中心放射性废物的沥青固化	(191)
卡尔斯鲁厄核研究中心放射性废物沥青固化工厂的运行经 验和发展工作	(208)
沥青-盐混合物的热稳定性研究	(223)
比利时核废物管理十五年	(236)
沉降法生产的沥青-盐混合物在水中的浸出性能	(256)
放射性废物的沥青固化 ——模拟废物和沥青的混合特性	(268)
放射性废物的沥青固化 ——离子交换树脂的热分解	(292)
放射性废物的沥青固化 ——连续沥青固化试验装置的梗概和系统整体、单机性能的 鉴定试验	(320)

放射性废物的沥青固化 (之二)

——利用连续沥青固化试验装置进行各种模拟废物的

沥青固化验证性试验 (323)

沥青产品的安全评价

——沥青产品的辐射分解 (326)

用于放射性废物处置的沥青固化物的安全性 (336)

经互会成员国沥青固化研究与发展工作述评 (345)

滞留在天然吸附剂上的放射性废物的沥青铸模固化法..... (356)

含硝酸钠的放射性废物的沥青固化..... (365)

核燃料循环中放射性废物的固化和贮存方法的研究..... (379)

与沥青固化过程中的燃烧和爆炸有关的问题 (389)

一九七六年安特卫普沥青固化讨论会摘要 (393)

放射性废物沥青 固化的过去、现在和未来

迪琼赫 (P.Dejonghe)

一、前 言

使用沥青固化低放废物的想法始于1958年日内瓦会议之前，从最初起就没有人认为使用沥青固化可以解决在固化、贮存或处置方面的所有问题，相反，只是将它看作解决方法之一，并且充分地估计到了它在应用中的局限性。但是，这一想法在近20年中已经有了一些进展，这一点我们大家是知道的。而且，今明两天我们将有机会对沥青固化了解更多的东西。

二、问题的提出

据我所知，设在莫尔的比利时核能中心(CEN/SCK)是最早研究使用沥青来固化放射性废物的，当时考虑到莫尔地区的土壤滞留放射性的能力很低，并且在莫尔地区有一个很大的用作饮用水源的含水区，因此为了能在莫尔地区的地表存放处理放射性废液所产生的泥浆和由焚烧而产生的焚烧灰，就进行了用沥青固化这些废物的研究工作。实际上，在CEN/SCK，起初几年曾采用过水泥固化废物的方法，但看来将废物用水泥固化然后贮存的技术不尽适当，主要是由于此种固化物的浸出率、不均匀性及其对大气条件的敏感性方面有问题。

因此，我们寄希望于固化物不溶并呈均匀块状的工艺。最初，我们考虑采用塑料，例如聚乙烯，它极易包覆象石墨或白垩

那样的无机填料，但是由于塑料的成本高，所以我们最后选择了沥青。那时另外一种可采用的方法是低放废物的玻璃化，但因担心技术上的复杂性很快就放弃了玻璃化的研究。不过应当指出，不久前我们又再次提出了这个想法。

1959年在加利福尼亚州伯克利召开的“地面处置放射性废物”会议论文中明确地提出了通过沥青固化来改进地表贮存固化废物的打算。为避免地下水的污染，对各种处理工艺产生的化学泥浆的长期贮存提出了固化的问题。正在研究的一种使泥浆不溶化的方法是使之与热石蜡或沥青混合。将放射性泥浆封装在不溶性的石油副产品中加以贮存可能是比较经济和安全的，而且这样作使得在莫尔地区长期贮存放射性废物变成了一种受欢迎的固体管理方式。

三、初 始 阶 段

利用一套初步的装置很快地对沥青固化工艺进行了试验。虽然是初步试验（图 1—5），但根据所得产品的性能（浸出率约 10^{-6} 克/厘米²·天；可以包容约50%的干渣；完全均匀的固化物；密度为 1.2），就可以选择一种快速混合的工艺方法和可以检验此原则的价值。

从以上结果可看出，从地表贮存角度研究所得的固化物性能同时也适用于海洋处置，这一点是偶然的巧合。

在莫尔所发展的方法是把预先干燥的泥浆（含有水分

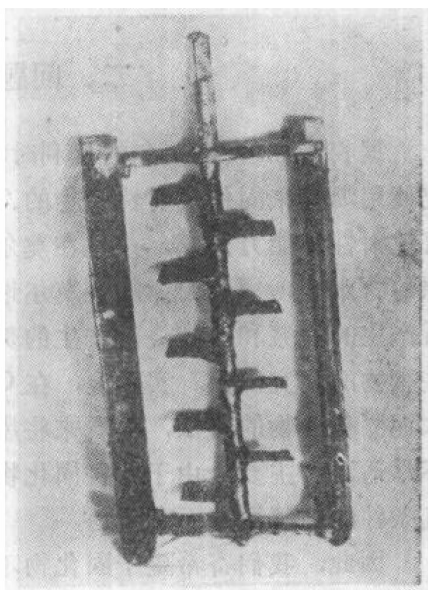


图 1 初步混合试验用搅拌机

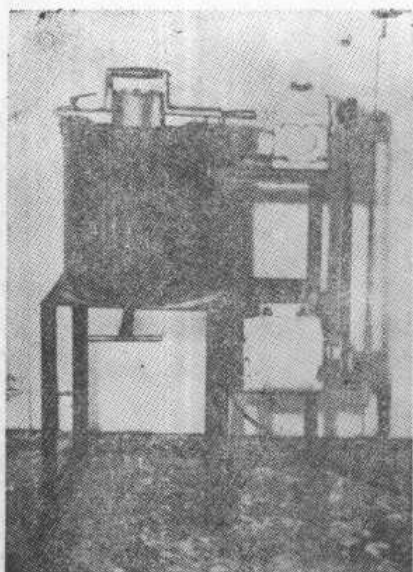


图 2 初步的混合试验的原始装置

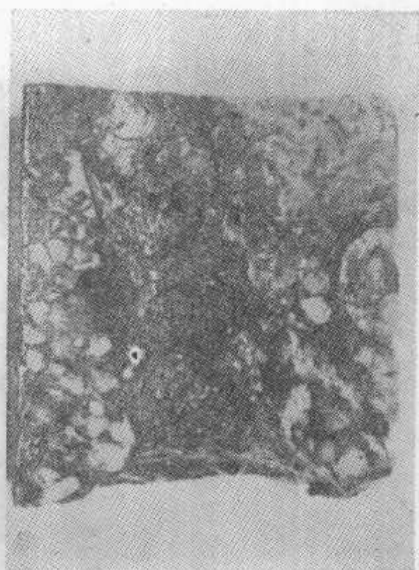


图 3 初步混合试验的不合格的产品



图 4 初步混合试验的混合器

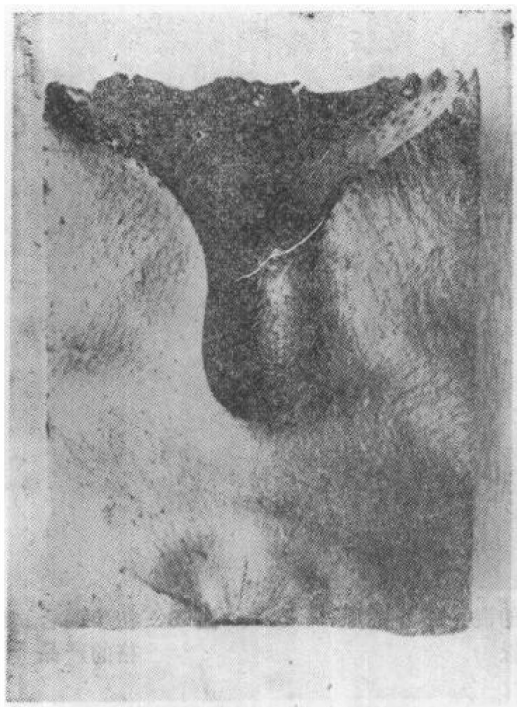


图 5 初步混合试验的合格的产品

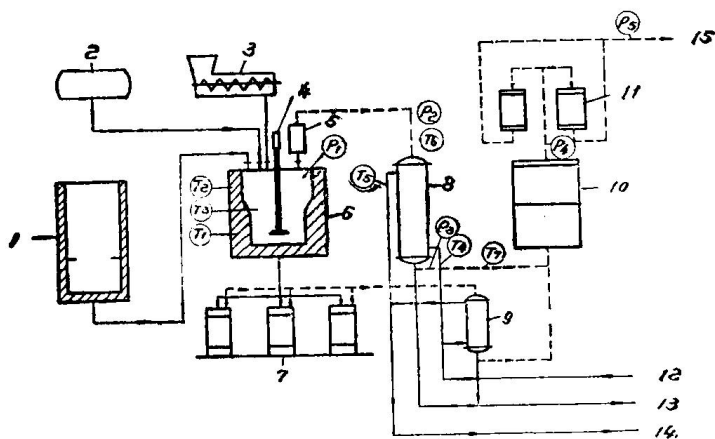


图 6 莫尔的放射性废物沥青固化的工艺过程

1—沥青熔化炉； 2—浓缩液； 3—泥浆输送； 4—搅拌器； 5—防溅球管；
6—混合蒸发器； 7—排料装置； 8—冷凝器； 9—冷凝器； 10—静电过滤器；
11—活性炭过滤器； 12—冷却水，来自净化废水贮槽； 13—冷凝水，
去废水处理； 14—废水，去净化废水贮槽； 15—去烟囱。

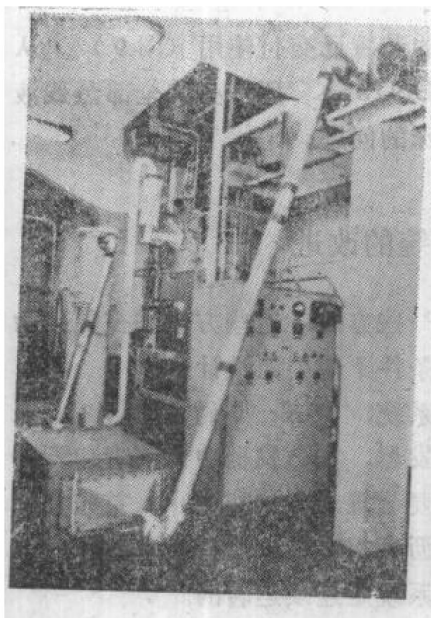


图 7 沥青包覆中间装置总体图

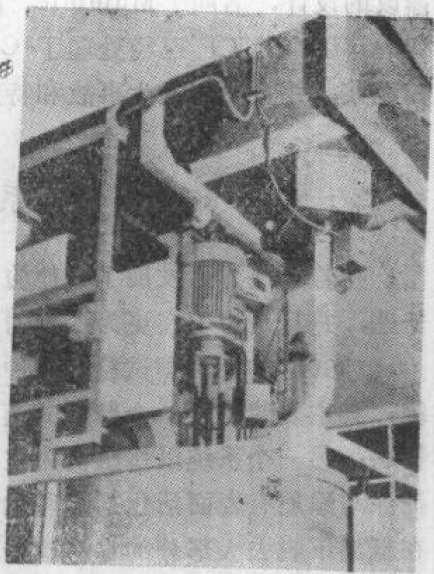


图 8 沥青包覆中间装置的加料和混合系统

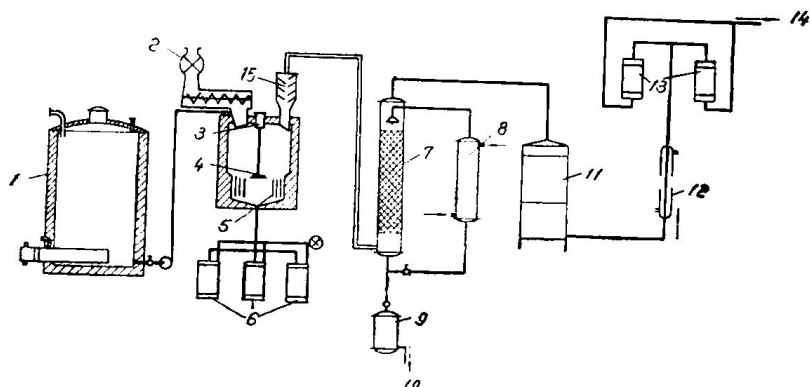


图 9 莫尔改进后的装置

1—10吨沥青罐； 2—转动闸门； 3—电机； 4—搅拌器； 5—感应加热器或蒸汽加热器； 6—产品桶； 7—接触式冷凝器； 8—冷却装置； 9—油过滤器； 10—去废水处理； 11—静电过滤器； 12—加热； 13—绝对过滤器； 14—去烟囱； 15—防溅管。

50%) 连续地加入热沥青中。已建造了一个小型中间工厂，并在1960年到1964年进行了运行（图 6、7、8）。1964年按照稍加

修改的设计，名叫“Mummie”的装置已交付使用（图9）。从1964年以来此工厂已经处理了 CEN/SCK 所产生的全部蒸残液和泥浆，并且没有发生事故和特殊的问题。

四、固化系统的改进

在若干地方已发展了其他的一些方法，这些方法往往更复杂一些，并且是为了在更为困难的条件下使用而设计的。

1960年初在法国试验了两种系统，其一叫做“Luwa”系统，其主要装置是一个薄膜式蒸发器，在蒸发器中用沥青包覆干物料；另一个系统以挤压机为主要装置（图10和11）。首先把湿泥浆与添加有表面活性剂的乳化沥青相混合，通过简单地分相，在低温下脱去大部分的水。这个系统是连续运转的。

此外，在几个欧洲国家和美国也研究了几种或多或少有所不同的方法。图12和13为橡树岭的研究系统。

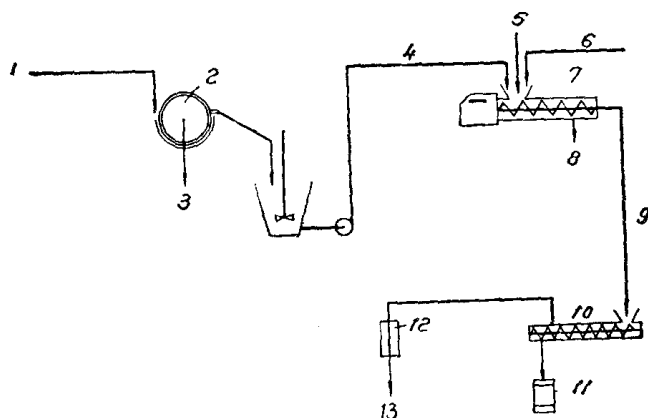


图10 法国的放射性废物沥青固化工艺示意图

- 1—含水90%泥浆； 2—过滤器； 3—过滤水； 4—含水50%泥浆；
5—表面活性剂； 6—22%沥青； 7—预包覆； 8—盐析水出口；
9—含水80%沥青混合物； 10—干燥； 11—产品桶； 12—冷凝器； 13—冷凝水。

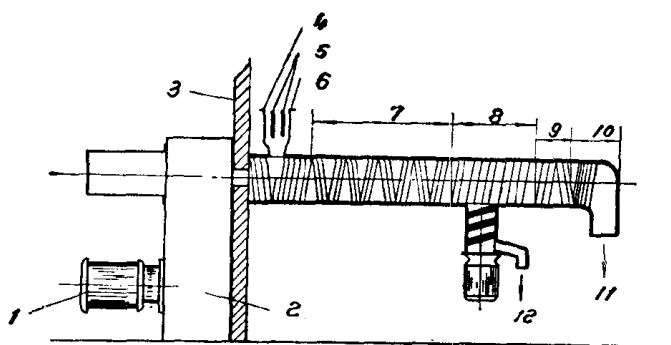


图11 马库尔的包覆机简图

1--电机； 2--变速箱； 3--铅屏蔽； 4--泥浆入口； 5--添加剂入口； 6--沥青入口； 7--混合段； 8--浓缩段； 9--高压段； 10--真空段； 11--产品出口； 12--净化水出口。

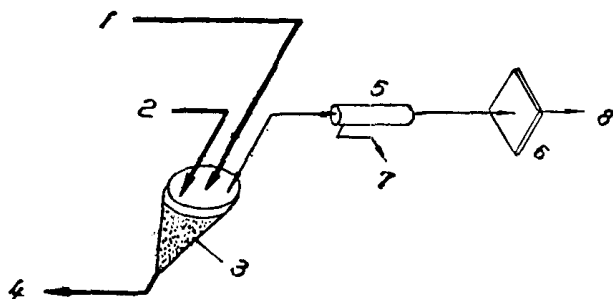


图12 中放废物沥青固化的示意流程图

1--废料； 2--乳化沥青； 3--蒸发器 (130°C , 160°C)； 4--产品； 5--冷凝器； 6--过滤器； 7--冷凝水，去低放废物处理； 8--废气。

最近我们参观苏联时看到了一个工厂，它既采用直接加料的方法也采用挤压机。

在处理废液过程中可看出这两种工艺方法之间的主要差别：使用挤压机可以除去水分及可溶盐分，而采用直接加料混合的方法则盐分均被沥青所包覆，不过对于后者，这个缺点可以通过适当的预处理和泥浆的过滤来克服。

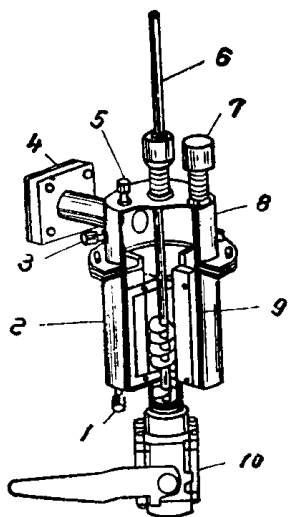


图13 实验室中研究废料与乳化
沥青混合所使用的刮膜式
蒸发器的径向剖图

1—热电偶引线； 2—4"直径6 $\frac{1}{2}$ "高的容器；
3—热电偶引线； 4—蒸汽出口； 5—废料入
口； 6—搅拌器轴； 7—乳化沥青入口； 8—
捕集段； 9—聚四氟乙烯刮片； 10—1 英寸
球阀（产品出口）。

五、特殊的使用

在研究新工艺的同时，由于已经将沥青固化的技术应用到了更为困难的条件之下，因此就使得我们能正确评价它的应用局限性了。1966年在里契兰德（Richland）会议期间，劳迪尔（Rodier）概括了这些局限性：

①温度：由于沥青在60—70°C 时变软，所以沥青不适于固化会自发产生热量的废物。

②辐照：由于沥青在 10^9 到 10^{10} 拉德的剂量下分解，所以辐照敏感性是限制沥青不能用到高放废物（HAW）中去的另一个原因。

虽然，最初研究沥青固化是用于低放废物（几个毫居/升）的，但使用沥青包覆中放废物已有长期的经验，不过制备比放远高于1 居里/升的固化物是不合适的。

③在废物-沥青混合物中可溶盐成分会增加混合物的浸出率。

④硝酸盐：硝酸盐的存在使在包覆操作和贮存期间可能造成某些安全问题，即有发生火灾的危险，从一开始就考虑到了这一点但至今还在研究。

对于含硝酸盐浓度较高的溶液，适于选择其他的包覆工艺或者把硝酸盐分离出去，也就是说要先通过沉淀反应和进行过滤。

六、结 论

正如所有固化放射性废物的方法一样，沥青固化也有应用的局限性，已经知道，这些局限性主要与比放射性、可溶性盐的含量（它增加浸出率）和硝酸盐的含量（高浓度时可能造成某种火灾危险）有关。

尽管如此，此方法还是通过了试验并且提供了广泛应用，很多种放射性废物均能用沥青固化而形成不溶物，而且固化物的最终体积大大地减少了。

最后，我想以1968年发表的贝恩斯(Burns)和柯拉尔(Clare)研究的结论作为结语，他们概括沥青固化应用的范围如下：

化学泥浆（实际上没有什么限制）；少量的离子交换树脂；再生液（要限制硝酸盐和可溶性盐的含量）；焚烧灰；塑料。

参 考 文 献

- 〔1〕 Ground Disposal of Radioactive Waste Conference Proceedings Berkeley, California, August 25—27, 1959, p.37—39.
- 〔2〕 Research Program on the Treatment and Storage of Radioactive Wastes by L. Baetsle', P. Dejongne, R. Lopes Cardozo, W. Maes, E.S.Simpson and N.Van de Voorde, 1962, par I p. 29—35.
- 〔3〕 Insolubilisation de Concentrats Radioactifs par Enrobage dans de l' Asphalte par P. Dejonghe, N. Van de Voorde, J. Pyck et A. Stijnen, 1964.
- 〔4〕 Perspectives d' Emploi du Bitume pour l' Enrobage des Produits Radioactifs par J. Rodier, G. Lefillatre et R. Estournel, Sy-

posium on the Solidification and Long-term Storage of Highly
Radioactive Wastes Richland, Washington, February 14—18,
1966.

〔5〕 Types of Waste Suitable for Incorporation into Bitumen by R.
H.Burns, C.W.Clare, AERE-M 2144 1968.

〔6〕 Atomic Energy Review Vol. X, №3 (reprint) 1971 p.661 *etc.*

〔施家佩译自 BNWL-tr-251. 王 韧校〕

欧洲化学公司中放废液与高加浓废浓缩液均相掺入沥青的研究工作述评

希尔德 (W.Hild) 厄斯克里胥 (H.Eschrich)

加里亚·格兰 (R.Garcia Galan)

古布朗德森 (R.Gulbrandsen)

塔贝格 (K.Tallberg)

一、前 言

欧洲化学公司产生的放射性废液与其它后处理厂的放射性废液类似。按照欧洲化学公司的分类法, 可将其细分为以下几类:

低放废液 (LLW): $<10^2$ 居里/米³, (国际原子能机构的第 1、2、3、4 类);

中放废液 (MLW): 10^2 — 10^4 居里/米³, (国际原子能机构的第 4 类);

高放废液 (HLW): $>10^4$ 居里/米³, (国际原子能机构的第 5 类)。

不过, 欧洲化学公司的中放废液比其它任何一个后处理厂的废液更为重要, 这是因为欧洲化学公司是以工业规模进行各种燃料化学脱壳试验的唯一的后处理厂。

为了妥善处理这种特殊的中放废液, 欧洲化学公司研究了一种中和自固化工艺 (NSSP), 它是一种比较简单、有适应性、经济的固化方法, 而且是湿法低温操作。其特点在别处已有介绍^(1~4)。该工艺的基础是将脱壳废液中可能存在的化合物转化成固

